

#9

**PATENT**

Attorney Docket No. 7390/71620

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Application of:

NISHIDA et al.

Application No.: 09/903,680

Filed: July 13, 2001

For: APPARATUS AND METHOD FOR MANUFACTURING RESIN-  
IMPREGNATED CURED SHEET, AND ... SHEET

October 29, 2001

**CLAIM OF PRIORITY**

Assistant Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

Dear Sir:

Submitted herewith in the above-identified application, through the undersigned attorney, Applicants hereby request that their above-identified application be treated as entitled to the right accorded by Title 35, U.S. Code, Section 119, having regard to the application, whereby certified copy JP -P2000-214441, filed 14 July 2000 and of the priority document is enclosed.

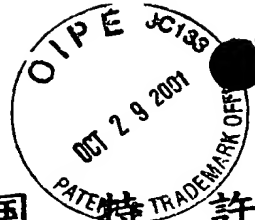
Respectfully submitted,

FITCH, EVEN, TABIN & FLANNERY

By: 

Kendrew H. Colton  
Registration No. 30,368

Fitch, Even, Tabin & Flannery  
1801 K Street, N.W.  
Suite 401L  
Washington, D.C. 20006-1201  
Telephone No. (202) 419-7000  
Facsimile No. (202) 419-7007



NF-2178  
US

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 7月14日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-214441

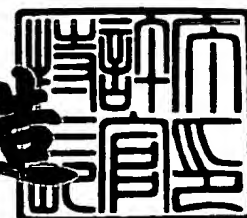
出 願 人  
Applicant(s):

三菱レイヨン株式会社

2001年 7月19日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3064796

【書類名】 特許願  
 【整理番号】 N00089  
 【あて先】 特許庁長官殿  
 【国際特許分類】 H01M 4/86  
 H05K 3/00

【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 2 0 番 1 号 三菱レイヨン株式会社  
 中央技術研究所内

【氏名】 西田 俊彦

【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 2 0 番 1 号 三菱レイヨン株式会社  
 中央技術研究所内

【氏名】 大橋 英彦

【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 2 0 番 1 号 三菱レイヨン株式会社  
 中央技術研究所内

【氏名】 中村 誠

【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 2 0 番 1 号 三菱レイヨン株式会社  
 中央技術研究所内

【氏名】 浜田 光夫

【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 2 0 番 1 号 三菱レイヨン株式会社  
 中央技術研究所内

【氏名】 三原 一茂

【特許出願人】

【識別番号】 000006035

【氏名又は名称】 三菱レイヨン株式会社

【代理人】

【識別番号】 100091948

【弁理士】

【氏名又は名称】 野口 武男

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011095

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9704250

【書類名】 明細書

【発明の名称】 樹脂含浸硬化シートの製造装置及び製造方法と、炭素系材料シートの製造装置及び製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 短繊維を抄造して得られ、未硬化樹脂を含む長尺な未硬化の繊維シートを搬送する搬送手段と、前記未硬化繊維シートの前記未硬化樹脂を硬化させて樹脂含浸硬化シートに成形する樹脂硬化手段とを有し、

前記搬送手段は、駆動ロールと、従動ロールと、前記駆動ロール及び従動ロールに掛け回されるエンドレスベルトとからなる少なくとも 1 組の回転ベルトを備えてなり、

前記樹脂含浸硬化シートの両側縁をトリミングするトリミングカッター、巻取り面圧を保持するための押えロール、及び巻取り軸が、前記樹脂含浸硬化シートの走行路に沿った順に配されてなる巻取り装置を更に備えてなることを特徴とする樹脂含浸硬化シートの製造装置。

【請求項 2】 前記搬送手段は、前記未硬化繊維シートの搬送路を挟んで配された少なくとも 2 組一対の回転ベルトを備えてなる請求項 1 記載の樹脂含浸硬化シートの製造装置

【請求項 3】 前記樹脂硬化手段は、前記未硬化繊維シートを前記エンドレスベルトを介してニップするよう配された 2 本一対の加熱加圧ロールを備えてなる請求項 1 又は 2 記載の樹脂含浸硬化シートの製造装置。

【請求項 4】 請求項 1～3 のいずれかに記載の樹脂含浸硬化シートの製造装置を用いて、長尺な前記未硬化繊維シートの前記未硬化樹脂を硬化させて長尺な樹脂含浸硬化シートを連続的に製造し、これを巻き取ること、を含んでなることを特徴とする樹脂含浸硬化シートの製造方法。

【請求項 5】 短繊維を抄造して得られる繊維製シートが、炭素短繊維と有機高分子系バインダーとを含んでなることを特徴とする請求項 4 記載の樹脂含浸硬化シートの製造方法。

【請求項 6】 短繊維を抄造して得られ、未硬化樹脂を含む長尺な未硬化繊維シートを硬化させて製造される樹脂含浸硬化シートを炭素化して炭素系材料シー

トを製造するための装置であって、

前記樹脂含浸硬化シートを水平方向に連続して移送し炭素化する炭素化処理室と、同炭素化処理室内に配されたガイドロールとを備えてなることを特徴とする炭素系材料シートの製造装置。

【請求項 7】 前記炭素系材料シートの両側縁をトリミングするトリミングカッターと、巻取り面圧を保持するための押えロールと、巻取り軸とが、前記炭素系材料シートの走行路に沿った順に配されてなる巻取り装置を更に備えてなることを特徴とする請求項 6 記載の炭素系材料シートの製造装置。

【請求項 8】 短繊維を抄造して得られ、未硬化樹脂を含む長尺な未硬化の繊維シートを搬送する搬送手段と、前記未硬化繊維シートの前記未硬化樹脂を硬化させて樹脂含浸硬化シートに成形する樹脂硬化手段とを有し、前記搬送手段は、駆動ロールと、従動ロールと、前記駆動ロール及び従動ロールに掛け回されるエンドレスベルトとからなる少なくとも 1 組の回転ベルトを備えてなる樹脂含浸硬化シートの製造装置を用いて、長尺な前記未硬化繊維シートの前記未硬化樹脂を硬化させて長尺な樹脂含浸硬化シートを連続的に製造すること、

請求項 7 記載の炭素化装置を用いて長尺な前記樹脂含浸硬化シートを炭素化させて長尺な炭素系材料シートを連続的に製造し、次いで同炭素系材料シートを巻き取ること、

を含んでなることを特徴とする炭素系材料シートの製造方法。

【請求項 9】 短繊維を抄造して得られる繊維製シートが、炭素短繊維と有機高分子系バインダーとを含んでなることを特徴とする請求項 8 記載の炭素系材料シートの製造方法。

#### 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、例えば可撓性あるプリント配線板の基板や燃料電池の電極基材の製造装置及び製造方法とに関する。特に、長尺な樹脂含浸硬化シートや長尺な炭素系材料シートを連続的に製造可能である製造装置及び製造方法とに関する。

【0002】

## 【従来の技術】

繊維強化プラスチックからなるプリント配線板の基板は、例えば特開2000-77803号公報にも従来技術として記載されているように、パラアラミド繊維とメタアラミドパルプ、若しくは溶融液晶性芳香族ポリエステル繊維とそのパルプの抄造シートにマトリックス樹脂を含浸させた有機繊維強化プリプレグを使用して製造されている。或いは、アラミド繊維とポリエステル等の熱可塑性繊維とからなる混合ウェブを熱カレンダーで一体化した乾式シートにエポキシ樹脂を含浸させてフレキシブル（屈曲性）基板とする方法もある。これらの従来の方法により製造されたプリント配線板の基板は、例えば特開平5-24165号公報に開示されているように、長尺なプリント配線板の基板を製造工程の最終段階で所要の寸法にカットし、積層して保管される。なお、前述のフレキシブルとは基板に局所的な屈曲性が付与されていることをいう。

## 【0003】

また、リン酸型燃料電池用の多孔質電極としては、従来から、炭素短繊維を抄造して得られた短尺な炭素繊維シートに熱硬化性樹脂を含浸させ、同樹脂を硬化した後、焼成して前記樹脂を炭素化することにより製造される多孔質炭素電極が主流となっている。

## 【0004】

この従来の多孔質炭素電極基材は肉厚が大きく、脆性が大きいため曲げるとすぐに壊れてしまうものが多い。また、これまでの電極はせいぜい炭素繊維同士の交差部分において結着されるため、その結着点の数が少なく、繊維軸方向と比較すると厚さ方向の導電性が必ずしも高くない。また、燃料電池内のガスや水の流通を円滑化して化学-電気エネルギー変換効率を上げるため、多孔質炭素電極基材の空孔率を高めると、導電性自体が低下するという問題もある。

## 【0005】

そこで、例えば特開平1-160867号公報に開示されている多孔質炭素電極は、炭素化が可能な樹脂として、熱硬化可能な自己硬化タイプのレゾール型フェノール樹脂と、非自己硬化タイプのノボラック型フェノール樹脂とを併用している。このように2種類の樹脂を採用することにより、樹脂硬化時にはレゾール

型フェノール樹脂のみが硬化し、その後の炭素化の際には硬化していないノボラック型フェノール樹脂が繊維間を流動して繊維同士の隙間に入り込み、炭素化されるため、導電性基材の導電性が高まる。

【0006】

また、例えば特開平7-142068号公報に開示されている多孔質炭素電極基材では、炭素繊維-炭素からなる多孔質構造の電極基材のマトリックス部に、繊維長が0.1mm以下である炭素質ミルド繊維が、電極基材の厚さ方向に存在するため、厚さ方向に配された繊維同士が交差部分以外でも結着される。従って、かかる構造をもつ電極基材は、全体的な導電性、特に電極基材の厚さ方向での導電性が向上する。

【0007】

一方、特開平8-2979号公報には、リン酸型燃料電池用の溝付多孔質炭素材が開示されている。同炭素材は、炭素繊維化可能な繊維及び／又は炭素繊維と、炭化又は黒鉛化可能な熱硬化性樹脂とを含むシートを抄造し、同シートを加熱加圧成形した後に、凹凸部が形成された金型内にクリアランスをもたせて配置する。その配置後に、前記シートを再加熱して膨張・完全硬化させ、次いで焼成することにより得られる。この電極基材の製法によると、溝状のガス流路が高精度に形成され、同時に軽量ではあっても機械的強度が高く、均質性、熱伝導性、ガス透過性にも優れた基材が得られるというものである。

【0008】

これらのリン酸型燃料電池に代わり、固体高分子型燃料電池がある。この固体高分子型燃料電池用の多孔質電極は、その電流密度がリン酸型燃料電池用電極の4～20倍と高いため、水素、酸素の供給量や、反応により生成した水の除去量が多くなる。一方、固体高分子型燃料電池の作動温度は100℃前後と低いため、生成された水が蒸発せず流動し、その水によりガス供給路が塞がり、ガス供給路が狭くなりやすい。

【0009】

そのため、固体高分子型燃料電池用の多孔質電極は、リン酸型燃料電池用の多孔質電極と比較して、ガスの拡散・透過性や、ハンドリングに耐えるための強度

及び柔軟性、更には電極製造時や電極を組んだときの圧縮に耐え得る強度などが要求される。

#### 【0010】

特開平9-157052号公報には固体高分子型燃料電池用の多孔質炭素板が開示されている。同公報に開示されている多孔質炭素板は、固体高分子型燃料電池に適用させるため、特に、厚さ方向の気体透過性を高めている。同公報によれば、厚さ方向の気体透過性を高めるため、炭素短繊維を抄造して得られた、炭素短繊維を実質的に二次元平面内においてランダムな方向に分散したシートに、レゾール型及びノボラック型のフェノール樹脂の混合割合が2:1～1:3である混合樹脂を所要量含浸させ、そのシートを加熱して前記樹脂を炭素化して得ている。

#### 【0011】

また、固体高分子型燃料電池用の多孔質電極は、リン酸型燃料電池用の多孔質電極と比べて電流密度が高いことから、固体高分子型燃料電池の小型化に対する要望が強くなりつつあり、その実現には多孔質電極の薄型化が必要となる。固体高分子型燃料電池の電極厚みは現時点では自動車用で0.2mm、据え置き用で0.3mm程度のものがあり、上記特開平9-157052号公報にも厚さが0.2mm程度の多孔質炭素板が開示されているが、将来的には更なる薄型化が望まれるものと予想される。

#### 【0012】

##### 【発明が解決しようとする課題】

ところで、上述したように、プリント配線板基板の製造工程では最終工程において所要の寸法の短尺なプレートにカットされ、その後、各種機器における用途に応じた所望の寸法に加工されて使用される。また、多孔質電極基材にあっても、上述したように短尺なシート状であり、この基材を一般には15cm×15cm程度の所定の電極寸法に切断して使用される。

#### 【0013】

このように、プリント配線板基板及び多孔質電極基材を短尺なシート状に製造した場合、それらの取り扱いや運送に不便であり、更には、電池組立現場におい

て実寸法に再度切断せざるを得ず、この切断時に材料の無駄が生じる。これらの不都合をなくして、前記プリント配線板基板を用いた各種の電子機器、或いは前記電極基材を用いた電池の生産性を向上させるために、前記プリント配線板基板及び電極基材を長尺品としてロール状に巻き取ることが望ましい。

## 【0014】

しかしながら、通常のプリント配線板基板は剛性が高いこともあって、従来からその製造工程の最終段階で短尺のプレート状にカットすることを前提として取り扱われており、長尺品としてのプリント配線板基板をロール状に巻き取ろうとはしていない。多孔質電極基材にあっても同様であり、柔軟性に欠けるためロール状に巻き取ることをしていない。

## 【0015】

特に電極基材の場合には、長尺な電極基材を連続的に製造することについても、上述したいずれの公報では何ら考慮がなされていない。しかして、これらの公報に開示されている従来の多孔質炭素電極基材の製造方法を踏襲して連続長の炭素電極基材を製造しようとする場合にも、炭素短繊維を抄造して長尺な炭素繊維シートを製造し、この長尺な炭素繊維シートに熱硬化性樹脂を連続的に付与することは可能である。しかしながら、従来の一般的な多孔質炭素電極基材の製造によれば、樹脂が付与された前記炭素繊維シートを所要の短尺シートにカットしたのち、ホットプレス装置により加熱押圧して硬化させている。

## 【0016】

こうした回分式のホットプレス装置を使い、熱硬化性樹脂が付与された長尺な炭素繊維シートに連続的な硬化処理を行おうとすれば、回分式の硬化装置の上流側及び下流側に、それぞれダンサーロールなどを設置して、硬化処理に必要な長さごとに搬送されるシートの搬送を一時的に止めて、炭素繊維シートを間欠的に硬化処理する、いわゆる半回分式とすることが考えられる。しかしながら、炭素繊維シートはプレス処理後に極めて脆くなるため、ホットプレス装置の端部、即ちプレス面と既にプレスが終了した隣接面との境界部分において同シートが欠けやすく、高品質の製品が得がたい。

## 【0017】

そこで、本発明は上述した問題点を克服するものであり、その目的の一つは長尺な繊維製シートに樹脂を含浸、硬化させて得られた可撓性のある巻取り可能な樹脂含浸硬化シートを連続的に製造する製造装置及びその製造方法を提供することにある、他の目的は長尺な繊維製シートに炭素化可能な樹脂を含浸、炭素化して得られた可撓性があり巻取り可能な炭素系材料シートを連続的に製造する製造装置及びその製造方法とを提供することにある。

【0018】

【課題を解決するための手段】

かかる目的を達成するために、本件請求項1に係る発明は、短繊維を抄造して得られ、未硬化樹脂を含む長尺な未硬化の繊維シートを搬送する搬送手段と、前記未硬化繊維シートの前記未硬化樹脂を硬化させて樹脂含浸硬化シートに成形する樹脂硬化手段とを有し、前記搬送手段は、駆動ロールと、従動ロールと、前記駆動ロール及び従動ロールに掛け回されるエンドレスベルトとからなる少なくとも1組の回転ベルトを備えてなり、前記樹脂含浸硬化シートの両側縁をトリミングするトリミングカッター、巻取り面圧を保持するための押えロール、及び巻取り軸が、前記樹脂含浸硬化シートの走行路に沿った順に配されてなる巻取り装置を更に備えてなることを特徴とする樹脂含浸硬化シートの製造装置を主要な構成としている。

【0019】

かかる樹脂含浸硬化シートの製造装置は、長尺な未硬化繊維シートを連続的に搬送しながら、同時に硬化処理を施すことができるため、未硬化繊維シートの長さ方向にわたって均一に硬化することができる。そのため、局部的に強度の弱い部分や欠けなども発生することなく、長さ方向に均一な品質の樹脂含浸硬化シートを、高い生産性をもって製造することができる。

【0020】

上述した装置により製造される樹脂含浸硬化シートは、例えばプリント配線板としてロール状に巻きとってユーザーに供給することができ、取り扱いやすく、運搬にも便利である。また、各種電子機器に応じた寸法にカットして使用する場合にも材料の無駄が少なく、製造効率も向上する。

## 【0021】

本件請求項2に係る発明によれば、前記搬送手段は、前記未硬化繊維シートの搬送路を挟んで配された少なくとも2組一对の回転ベルトを備えている。

このように2組の回転ベルトを前記未硬化繊維シートを挟んで上下に配することにより、前記シートを所要の長さにわたってエンドレスベルトにより挟持することができる。そのため、得られる樹脂含浸硬化シートの厚みがより精密に制御できると共に、長さ方向での厚みの均一性も高めることができる。

## 【0022】

前記未硬化樹脂が熱硬化性樹脂である場合には、前記樹脂硬化手段として加熱手段を採用する。この場合に、加熱方式は加熱ロール等の伝導加熱であっても、或いは加熱領域を設けた対流加熱や、遠赤外線等の放射加熱であっても良いが、熱ロス低減の観点から加熱ロール等の伝導加熱であることが好ましい。

## 【0023】

本件請求項3に係る発明によれば、前記樹脂硬化手段は、前記未硬化繊維シートを前記エンドレスベルトを介してニップするよう配された2本一对の加熱加圧ロールを備えている。

なお、2本一对の前記加熱加圧ロールを、未硬化繊維シートの搬送方向に沿って複数対、配することが好ましく、その場合、前記搬送方向への加熱加圧ロール対間のピッチ、及び加熱加圧ロールの径は、加熱加圧ロールの前後におけるエンドレスベルトの温度変化や、未硬化繊維シート自体が受ける圧力変動等を考慮して、適宜決定することができる。

## 【0024】

また、前記加熱加圧ロールの加熱温度（硬化時の温度）やプレス圧力も、適宜、設定できるが、例えば、炭素系材料シートを製造する際の間製品である未硬化繊維シートを製造する場合には、硬化時の温度としては300℃以下とし、プレス圧力は5MPa以上、20MPa未満とすることが好ましい。

## 【0025】

本件請求項4に係る発明は、上記請求項1～3のいずれかに係る樹脂含浸硬化シートの製造装置を用いて、長尺な前記未硬化繊維シートの前記未硬化樹脂を硬

化させて長尺な樹脂含浸硬化シートを連続的に製造し、これを巻き取ること、を含んでなることを特徴とする樹脂含浸硬化シートの製造方法を主要な構成としている。

【0026】

更に本件請求項5に係る発明は、短繊維を抄造して得られる繊維製シートが、炭素短繊維と有機高分子系バインダーとを含んでなることを特徴としている。

短繊維を抄造して得られる繊維製シートの前記短繊維としては、補強用としてガラス繊維、アラミド繊維、セラミック系繊維、炭素繊維を使用することができる。これら短繊維に有機高分子系バインダーを加えて抄造し、得られる繊維製シートに、未硬化樹脂を含浸、乾燥させて前記未硬化繊維シートが得られる。前記未硬化樹脂としては、常温において粘着性、或は流動性を示すものが好ましい。

【0027】

前記樹脂含浸硬化シートを炭素化することにより、炭素系材料シートが得られる。この炭素化处理装置としては、一般的に炭素繊維用の焼成炉を用いることができ、この焼成炉には、被処理体を水平方向に移送する横型焼成炉と、被処理体を垂直方向に移送する縦型焼成炉がある。前記樹脂含浸硬化シートを炭素化する場合に、縦型焼成炉を用いることも可能であり、同縦型焼成炉はガイドロールを設置する必要性が無いなどの有利な点もあるが、雰囲気ガスのシール性や、異常時のハンドリング性等を考慮すれば、横型焼成炉を採用することが好ましい。

【0028】

従って、本件請求項6に係る発明は、短繊維を抄造して得られ、未硬化樹脂を含む長尺な未硬化繊維シートを硬化させて製造される樹脂含浸硬化シートを炭素化して炭素系材料シートを製造するための装置であって、前記樹脂含浸硬化シートを水平方向に連続して移送し炭素化する炭素化处理室と、同炭素化处理室内に配されたガイドロールとを備えてなることを特徴とする炭素系材料シートの製造装置を主要な構成としている。

【0029】

前記ガイドロールとしては黒鉛製の丸棒又は丸パイプを採用することが好ましく、このロール両端を黒鉛製のロール支持台にて支持するだけの簡易な構造であ

っても、黒鉛自体の自己潤滑性のため容易に回転可能である。なお、ガイドロールを複数配する場合に、ロールピッチは、樹脂含浸硬化紙の重量、炭素化処理時の張力に応じて適宜決定することができる。

【0030】

前記炭素化処理室内にガイドロールを設置しない場合には、樹脂含浸硬化シートがその自重により炭素化処理室内の底面に擦れて、割れや欠けの誘発因子になり、炭素化処理後に得られた炭素系材料シートの品質が低下する。

【0031】

得られる長尺の炭素系材料シートは、例えば多孔質炭素電極基材として必要な所定の長さに切断することもできるが、上述したように硬化及び炭素化を連続的に行うことにより、得られる炭素系材料シートは長さ方向に均一な十分な柔軟性を備えている。そのため、ロール状に巻きとってユーザーに供給することも可能である。

【0032】

そこで、本件請求項7に係る発明は、前記炭素系材料シートの両側縁をトリミングするトリミングカッターと、巻取り面圧を保持するための押えロールと、巻取り軸とが、前記炭素系材料シートの走行路に沿った順に配されてなる巻取り装置を更に備えている。更に前記巻取り装置は、巻取りボビンの切替え作業が容易な2軸ターレット巻取り装置を採用することが、生産効率が向上するため好ましい。

【0033】

また、本件請求項8に係る発明は、短繊維を抄造して得られ、未硬化樹脂を含む長尺な未硬化の繊維シートを搬送する搬送手段と、前記未硬化繊維シートの前記未硬化樹脂を硬化させて樹脂含浸硬化シートに成形する樹脂硬化手段とを有し、前記搬送手段は、駆動ロールと、従動ロールと、前記駆動ロール及び従動ロールに掛け回されるエンドレスベルトとからなる少なくとも1組の回転ベルトを備えてなる樹脂含浸硬化シートの製造装置を用いて、長尺な前記未硬化繊維シートの前記未硬化樹脂を硬化させて長尺な樹脂含浸硬化シートを連続的に製造すること、請求項7記載の炭素化装置を用いて長尺な前記樹脂含浸硬化シートを炭素化

させて長尺な炭素系材料シートを連続的に製造し、次いで同炭素系材料シートを巻き取ること、を含んでなることを特徴とする炭素系材料シートの製造方法を主要な構成としている。

【0034】

前記炭素系材料シートを外径が75mm以上のロールに巻き取ることができるように、同シートに十分な柔軟性をもたせるためには、前記シートは、厚みが0.05~0.5mm、嵩密度が0.35~0.6g/cm<sup>2</sup>、曲げ強度が45MPa以上であることが好ましい。更には、短繊維として平均直径が5μm未満、繊維長が3~10mmの極細短繊維を、総繊維量の50重量%以上含んでいることが好ましい。

【0035】

更に、本件請求項9に係る発明に係る発明によれば、短繊維を抄造して得られる繊維製シートが、炭素短繊維と有機高分子系バインダーとを含んでいる。

炭素系材料シートを製造する場合においては、炭素系材料シートの基材強度、平滑性、その他電気抵抗や、原料である炭素繊維シートを抄造する際の炭素短繊維の水分散性等を考慮すると、繊維長3mm以上10mm以下、直径4μm未満の炭素短繊維を使用することが好ましい。

また、前記有機高分子系バインダーとしては、炭素系材料シートを製造する場合、ポリビニルアルコール又はアクリロニトリル系ポリマーのパルプ状物又は短繊維をしようすることが好ましく、この有機高分子系バインダーの前記繊維製シートに対する含有率は5wt%以上、40wt%以下であることが好ましい。

【0036】

短繊維を抄造して得られる繊維製シートの前記短繊維としては、上述した炭素繊維以外にも、例えば樹脂含浸硬化シートの補強用としてガラス繊維、アラミド繊維、セラミック系繊維を使用することができる。

これら短繊維に有機高分子系バインダーを加えて抄造し、得られる繊維製シートに、未硬化樹脂を含浸、乾燥させて前記未硬化繊維シートが得られる。

前記未硬化樹脂としては、常温において粘着性、或は流動性を示すものが好ましく、特に炭素系材料シートを製造する場合にあっては、前記未硬化樹脂として

、炭素化後、導電性物質として残存するフェノール樹脂、フラン樹脂等が好ましく使用され、同樹脂の濃度は5wt%以上、40wt%以下であることが好ましい。

【0037】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の好適な実施形態について図面を参照して詳細に説明する。

図1は、本発明による好適な第1実施形態である樹脂含浸硬化シートの製造装置10を概略的に示している。なお、本実施形態では樹脂含浸硬化シートとして、炭素系材料シートを製造する際の間製品である、炭素化可能な熱硬化性樹脂が含浸、硬化された樹脂含浸硬化シートを製造する場合について説明する。但し、本発明の樹脂含浸硬化シートの製造装置は、炭素系材料シートの間製品である前記樹脂含浸硬化シートの製造に限定されるものではなく、例えば、プリント配線基板などを製造する場合にも使用できる。

【0038】

前記樹脂含浸硬化シートの製造装置10は、短繊維を抄造して得られた長尺な繊維製シートに未硬化の熱硬化性樹脂を付与した未硬化繊維シート1aを、連続的に加熱することにより前記熱硬化性樹脂を硬化させて、長尺な樹脂含浸硬化シート1bを連続的に製造する装置である。

【0039】

前記樹脂含浸硬化シートの製造装置10は、長尺なシート状物（未硬化繊維シート1a，樹脂含浸硬化シート1b）を連続的に搬送する搬送手段を備えている。同搬送手段は、搬送方向の上流側に駆動ロール2aを配すると共に、同搬送方向の下流側に従動ロール2bを配し、これら駆動ロール2a及び従動ロール2bにエンドレスベルト2cを掛け回して構成される1組の回転ベルト2を備えている。前記エンドレスベルト2cの上面が前記シート状物1a，1bの搬送面となっている。なお、本実施形態では駆動ロール2aを搬送方向上流側に、従動ロール2bを搬送方向下流側に配しているが、この駆動ロール2aと従動ロール2bとを互いに逆側に配することもできる。

【0040】

前記樹脂含浸硬化シートの製造装置 10 は更に、前記未硬化繊維シート 1 a の熱硬化性樹脂を硬化させて樹脂含浸硬化シート 1 b に成形する樹脂硬化手段 3 を備えている。同樹脂硬化手段 3 としては、前記シート状物 1 a, 1 b を前記エンドレスベルト 2 c と共にニップするよう、前記シート状物 1 a, 1 b 及び前記エンドレスベルト 2 c を挟んで上下に配された 2 本の加熱加圧ロール 3 a を一対として、シート状物 1 a, 1 b の搬送方向に 3 対、配されている。同加熱加圧ロール 3 a は、その両端又は多点にて支持されている。なお、同加熱加圧ロール 3 a の熱源としては電気や熱媒などを適宜採用することができる。

【0041】

前記加熱加圧ロール 3 a の径、及び 3 対の加熱加圧ロール 3 a 対のピッチは、加熱加圧ロール 3 a の前後におけるエンドレスベルト 2 c の温度変化、及びシート状物 1 a, 1 b 自体が受ける圧力変動等を考慮して、適宜決定される。また、加熱加圧ロールの温度及びプレス圧力は、熱硬化性樹脂材料に応じて適宜設定される。例えば、炭素系材料シートを製造する際の途中製品である樹脂含浸硬化シートを製造する場合には、炭素化可能な樹脂を硬化させる際の温度領域としては 300℃以下であり、プレス圧力は 5MPa 以上、20MPa 未満に設定することが好ましい。

【0042】

かかる樹脂含浸硬化シートの製造装置 10 は、長尺なシート状物（未硬化繊維シート 1 a, 樹脂含浸硬化シート 1 b）を連続的に搬送しながら、同時に加熱、加圧できるため、シート状物 1 a, 1 b の長さ方向にわたって均一に加熱することができる。そのため、局部的に強度の弱い部分や欠けなども発生することなく、長さ方向に均一な品質の樹脂含浸硬化シート 1 b を、高い生産性をもって製造することができる。

【0043】

図 2 は、本発明による好適な上記実施形態の変形例による樹脂含浸硬化シートの製造装置 11 を概略的に示している。なお、上述した実施形態と同一の構成については同一の符号を付し、その詳細な説明は省略する。

【0044】

同樹脂含浸硬化シートの製造装置 11 は、駆動ロール 2a 及び従動ロール 2b にエンドレスベルト 2c を掛け回して構成される回転ベルト 2 が、搬送される前記シート状物 1a, 1b を挟んで上下に一組ずつ配されている。即ち、前記シート状物 1a, 1b は上下の回転ベルト 2 の各エンドレスベルト 2c によって挟持されて搬送される。

【0045】

本装置 11 にあっては、2 本の加熱加圧ロール 3a は、上下のエンドレスベルト 2c により挟持された前記シート状物 1a, 1b を、前記エンドレスベルト 2c の外側からニップするように配されている。

【0046】

このように 2 組の回転ベルト 2 をシート状物 1a, 1b を挟んで上下に配することにより、前記シート状物 1a, 1b は加熱加圧ロール 3a の設置個所だけでなく、所要の長さにわたってエンドレスベルト 2c により挟持されるため、得られる樹脂含浸硬化シート 1b の厚みをより精密に制御できると共に、長さ方向での厚みの均一性が高まる。

【0047】

図 3 は、本発明の第 2 実施形態による炭素系材料シートの製造装置 20 を概略的に示している。

前記炭素系材料シートの製造装置 20 は、長尺な前記樹脂含浸硬化シート 1b の前記樹脂を炭素化して、炭素系材料シート 1c を連続的に製造する装置である。

【0048】

前記炭素系材料シートの製造装置 20 は、シート状物（樹脂含浸硬化シート 1b, 炭素系材料シート 1c）を水平方向に搬送して炭素化する横型焼成炉を採用している。同横型焼成炉における炭素化処理室 4 の底壁 4a には複数のガイドロール支持台 5a が一定の間隔で設置され、同ガイドロール支持台 5a にはガイドロール 5b がその両端で、或いは複数点で支持されている。前記シート状物 1b, 1c は複数の前記ガイドロール 5b の上面を水平方向に搬送される。なお、図中、符号 4b は炭素化処理室の天板を示す。

【0049】

前記ガイドロール5bは黒鉛製の丸棒又は丸パイプの両端を、黒鉛製の前記支持台5aにより支持するだけの簡易な構造であり、前記ガイドロール5bは黒鉛自体の自己潤滑性のため容易に回転可能である。

【0050】

なお、複数の前記ガイドロール5bのピッチは、シート状物1b、1cの重量、及び炭素化处理時の前記シート状物1b、1cの張力に応じて、前記シート状物1b、1cが炭素化处理室4の底壁4aに接触し、擦れることがないように適宜、決定される。また、炭素系材料シート1cを製造する場合には、前記炭素化处理室4内の温度を1000℃以上に設定する。

【0051】

炭素化处理室4内に前記ガイドロール5bを設置することにより、樹脂含浸硬化シート1b及び炭素系材料シート1cは、前記処理室4の全長にわたって所定の高さを安定して走行することが可能となる。その結果、前記樹脂含浸硬化シート1b及び炭素系材料シート1cが自重により炭素化处理室4の底面4aに接触して、割れや欠けの誘発因子が生じることがなく、高品質の炭素系材料シート1cを製造することが可能になる。

【0052】

図4は、本発明の好適な第3実施形態による巻取り装置13を概略的に示している。

前記巻取り装置13の巻取り部には、巻取り中の巻取りボビン6aと、スタンバイボビン6bとを備えた2軸ターレットワインダー6が設置されている。

【0053】

前記巻取り装置13は更に、前記ターレットワインダー6の上流側に、長尺な炭素系材料シート1cの幅方向の両端をトリミングするためのトリミングカッター7を備えている。更に、前記巻取りボビン6aの近傍には、同巻取りボビン6aに対する炭素系材料シート1cの巻取り面圧を一定に保持するための押えロール8を備えている。この押えロール8は巻取り面に接触させて配置してもよく、或いは巻取り面に対して非接触に配置することもできる。

【0054】

炭素化处理を終えて得られた長尺な炭素系材料シート1cは、前記トリミングカッター7により幅方向の両端が切断されて巻取り端面が揃えられ、そして前記押えロール8により巻取り面圧を一定に保持された状態で、巻取りボビン6aに巻き取られる。

【0055】

以下、本発明について実施例及び比較例を挙げて具体的に説明する。

なお、以下の実施例及び比較例において、繊維製シート及び熱硬化性樹脂には以下の同一のものを採用した。

(繊維製シート)

炭素短繊維の抄造シート状物：幅350mm、厚み0.5mm

炭素短繊維の平均繊維長：6mm

バインダー：PVA短繊維、炭素繊維比20wt%含有

(熱硬化性樹脂)

フェノール樹脂（大日本インキ化学（株）社製フェノライト5900）の15質量%エタノール溶液に、上記繊維製シートを浸漬し、炭素繊維100重量部に對し75重量部付着させた。

【0056】

「実施例1」

図2に示すように、回転ベルト2をシート状物の搬送路を挟んで上下に2組設置し、且つ2本1対の加熱加圧ロール3aを6対、搬送方向に一定の間隔で設置した樹脂含浸硬化シートの製造装置を使用した。前記加熱加圧ロール3aは全て直径が160mmであり、加熱加圧ロール3a対のピッチはシート状物の搬送方向に220mmとした。前記加熱加圧ロール3aは、温度が250℃で7MPaのニップ圧力条件とし、1番目の加熱加圧ロール対から6番目の加熱加圧ロール対までの滞在時間を2分とし、連続的に硬化処理した。

【0057】

次いで、図3に示すような、炭素化处理室4内部に樹脂含浸硬化シートのガイドロール5bを有する横型焼成炉を採用した炭素系材料シートの製造装置を用い

て、連続的に炭素化处理した。前記ガイドロール5bは直径が12mmであり、ガイドロールのピッチはシート状物の搬送方向に30mmとした。前記処理室4内の最高温度を2000℃、同処理室4の滞在時間を10分とし、連続的に炭素化处理した後、得られた炭素系材料シートを図4に示す巻取り装置によりロール状に巻き取った。

#### 【0058】

得られた炭素系材料シートは、割れや欠け等の問題はなくハンドリング性にも優れた曲げ強度の高い高品質のものであった。また、長尺な炭素系材料シートを連続的に製造することができ、生産効率も高い。

#### 【0059】

##### 「比較例1」

樹脂含浸硬化シートの製造装置としてホットプレスを採用し、半回分式として長尺な未硬化繊維シートに硬化処理を施した以外は、実施例1と同様の条件で長尺の炭素系材料シートを製造した。

ホットプレスでの処理温度、圧力、処理時間について各種条件を変更して製造したが、いずれの条件であっても炭素化处理して最終的に製造された炭素系材料シートは、プレス境界線付近で非常に脆くなり品質が低下し、更には柔軟性にも欠け、ハンドリング性の劣るものであった。

#### 【0060】

##### 「比較例2」

ガイドロール5bを設置していない横型焼成炉を用いて炭素化を行った以外は、実施例1と同様の条件で長尺な炭素系材料シートを製造した。

得られた炭素系材料シートはその表面に、焼成炉の底壁との擦れにより発生したと考えられる毛羽立ちが認められ、更には炭素系材料シートの搬送方向と直交する幅方向の端部に欠けが生じており、品質及び製品歩留りの低いものであった。

#### 【0061】

以上、説明したように、本発明の樹脂含浸硬化シートの製造装置を採用することにより、連続的に搬送される長尺な未硬化繊維シートに、加熱、加圧を同時に

連続的に行うことができるため、従来の回分式硬化方法と比較して生産性及び炭素系材料シートのハンドリング性が著しく向上する。更には、本発明の炭素系材料シートの製造装置を使用することにより、炭素系材料シートに割れや欠けを生じることなく品質に優れた炭素系材料シートを製造することが可能になる。このように長尺な炭素系材料シートを連続的に製造することができるため、生産性の向上を図ることができ、高品質で長尺な炭素系材料シートのロール状での供給が可能になる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明における好適な樹脂含浸硬化シートの製造装置の概略図である。

【図 2】

本発明における他の好適な樹脂含浸硬化シートの製造装置の概略図である。

【図 3】

本発明における好適な炭素系材料シートの製造装置の概略図である。

【図 4】

本発明における炭素系材料シートの巻取り装置の概略図である。

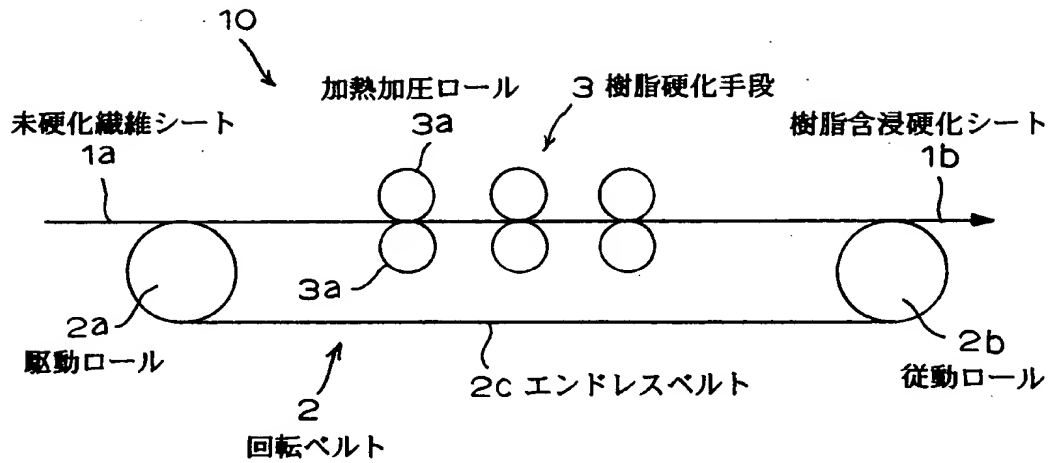
【符号の説明】

1 a	未硬化繊維シート
1 b	樹脂含浸硬化シート
1 c	炭素系材料シート
2	回転ベルト
2 a	駆動ロール
2 b	従動ロール
2 c	エンドレスベルト
3	樹脂硬化手段
3 a	加熱加圧ロール
4	炭素化处理室
4 a	炭素化处理室の底壁
4 b	炭素化处理室の天板

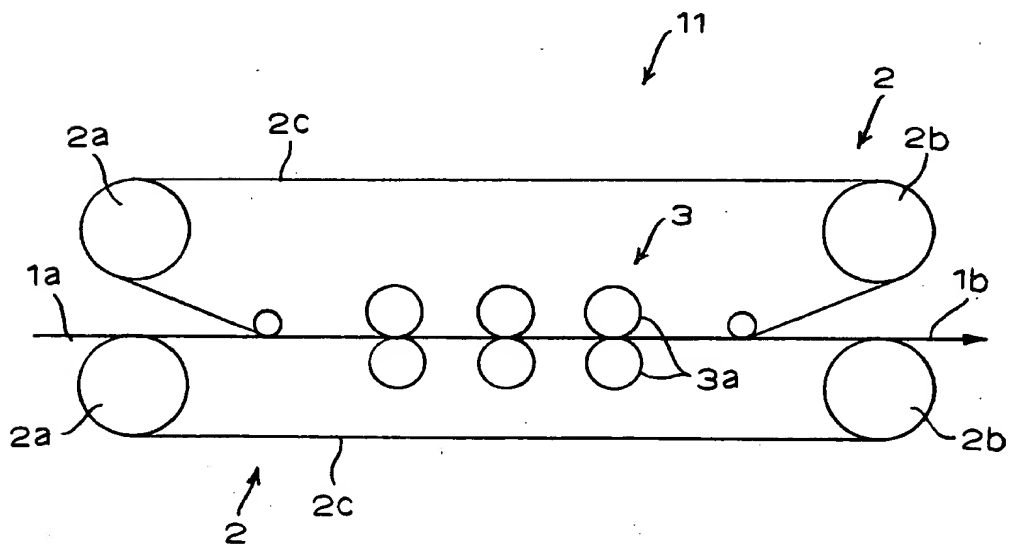
- 5 a      ガイドロール支持台
- 5 b      ガイドロール
- 6        ターレットワインダー
- 6 a      巻取りボビン
- 6 b      スタンバイボビン
- 7        トリミングカッター
- 8        押えロール

【書類名】 図面

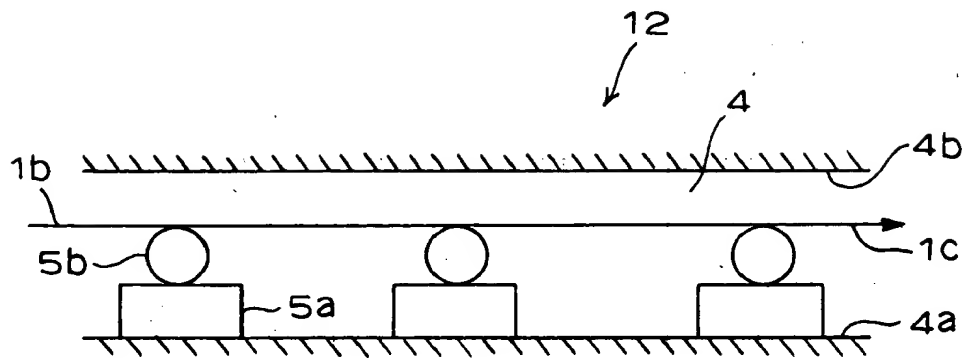
【図 1】



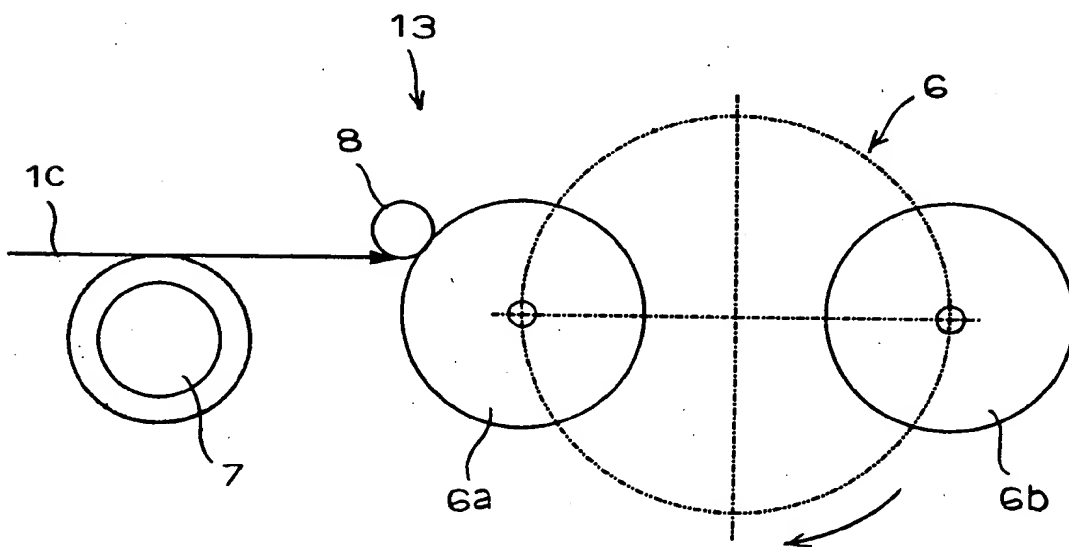
【図 2】



【図 3】



【図 4】



## 【書類名】 要約書

【課題】短繊維を抄造して得られ未硬化樹脂を含む長尺な未硬化繊維シートを連続的に硬化して樹脂含浸硬化シートを製造し、次いで連続的に炭素化して巻取り可能な炭素系材料シートを製造できる製造装置と製造方法とを提供する。

【解決手段】長尺な未硬化繊維シート(1a)を、駆動ロール(2a)と、従動ロール(2b)と、これらロール(2a,2b)に掛け回されるエンドレスベルト(2c)とからなる1組の回転ベルト(2)を備えた搬送手段により搬送する。前記未硬化繊維シート(1a)を前記エンドレスベルト(2c)を介してニップするよう配された2本一対の加熱加圧ロール(3a)を備えた樹脂硬化手段(3)により加熱加圧して樹脂含浸硬化シート(1b)を製造する。更に、前記樹脂含浸硬化シートを水平方向に連続して移送し炭素化する炭素化处理室と、同炭素化处理室内に配されたガイドロールとを備えた炭素系材料シートの製造装置により前記樹脂含浸硬化シートを炭素化して炭素系材料シートを製造する。

【選択図】 図1

特 2000-214441

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2000-214441
受付番号	50000893800
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成12年 7月17日

### <認定情報・付加情報>

【提出日】 平成12年 7月14日

次頁無

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000006035]

1. 変更年月日 1998年 4月23日  
[変更理由] 住所変更  
住 所 東京都港区港南一丁目6番41号  
氏 名 三菱レイヨン株式会社